

⑤日本分類

15 A 0

13 A 5

13 A 54

日本国特許庁

⑪特許出願公告

昭44-12009

⑩特許公報

④公告 昭和44年(1969)5月31日

発明の数 1

(全4頁)

1

2

⑤六弗化ウランガスと液との反応装置

②特 願 昭39-49251

②出 願 昭39(1964)8月31日

⑦発明者 山口正巳

川崎市小向東芝町1東京芝浦電気
株式会社中央研究所内

同 大野正剛

川崎市末広町250日本原子力事
業株式会社研究所内

同 広岡克己

川崎市登戸新町306

⑦出 願 人 東京芝浦電気株式会社

川崎市堀川町72

代 表 者 岩下文雄

⑦出 願 人 日本原子力事業株式会社

東京都千代田区霞が関3の2の5
清藤象二

同

⑦出 願 人 三井金属鉱業株式会社

東京都中央区日本橋室町2の1の
1

代 表 者 高林敏巳

代 理 人 弁理士 鈴江武彦 外4名

図面の簡単な説明

図面はこの発明装置実施例の断面的説明図である。

発明の詳細な説明

この発明は六弗化ウランガスと例えばアンモニア水のような液とを均一にかつ効率よく反応させて例えば重ウラン酸アンモニウムのような沈殿反応物を能率よく製造し得る装置に関する。

二酸化ウラン核燃料ペレットの製造原料となる例えば重ウラン酸アンモニウムを六弗化ウランとアンモニア水との反応によつて得ようとする場合に、六弗化ウラン(UF_6)は放射性物質であつて、とくにそれをガス状で取扱う場合には、外気への漏洩は絶無に近いことを要求されるので、これと

アンモニア水とを反応させる際の反応槽には機械的攪拌軸の取り付けは好ましくなく、また UF_6 は水分と反応すると弗化水素を生じて腐食性を示すほかに64.0℃の三重点を持ち、この温度以下では、ガス相と固相の共存になつて、常温に近い温度においての気液接触式の反応には都合が悪いという特異な性質をもっているため、六弗化ウランガスとアンモニア水との反応には通常の気液接触装置を用いることは好ましくない。とくに未反応の残留 UF_6 ガスを出来得る限り減らすことは反応収率を増すほかに、残留 UF_6 ガスの回収あるいは廃棄の工程を複雑にしないでよいので重要なことであり、このような条件を満足させる装置が要望されている。

この発明は通常の気液接触装置を用いず、残留六弗化ウランガスを極力減少させて、六弗化ウランガスと液とを均一にかつ効率よく反応させる装置であつて、あらかじめ反応槽内に仕込まれた例えばアンモニア水のような液を循環ポンプにより槽外に連続的にとり出し、その一部を槽内の拡散器内に循環噴射して槽内液を攪拌させ、残部を槽外のエセクタを経て槽内に循環させ、同時に供給六弗化ウランガスの吸引とともに槽内の未反応六弗化ウランガスを含有する上部気相空間のガスを吸引して槽内の反応帯に戻し、さらに槽の上部気相空間内には凝結用冷却管を設けてこの空間ガス内の未反応六弗化ウランガスをこれに凝結付着させるようにしたものである。

この発明装置を図面について詳細に説明する。反応槽1内にあらかじめ管2から反応液例えばアンモニア水を仕込み、槽内の上部気相空間25には反応の開始前に窒素のような UF_6 と反応しない乾燥ガスを配管26から置換導入し、管5, 6, 10およびエセクタ8とともに乾燥ガスで満たしておく。つぎに仕込液を管3よりポンプ4によつて連続的に取り出し、これを管5および6を経てエセクタ8に送り、ここで管7より供給導入される六弗化ウランガスを吸引し、これを管9を経て

槽1内に循環反応させる。この際六弗化ウランの三重点は64.0℃であるので、管7をこの温度以上に保つて UF_6 のガス相と固相とが共存しないように、ガス相のみの状態で流通させることが必要である。管5の液の一部は分岐管10を経て反応槽1のなかの拡散器11内に吹きこまれるが、分岐管10の先端14がエゼクタの作用をするので、反応槽1内に循環液が噴射されると、槽1中の液は拡散器11の上部から下向きに吸いこまれ、液が槽内を循環しつつ反応が進行する。循環液のエゼクタ8および拡散器11への配分量はバルブ12および13によつてこれを制御する。

反応は常温よりもやや高い温度でこれをおこなう。 UF_6 とアンモニア水との反応は、発熱反応であるので、反応熱によつて液は若干温度が上昇する。したがつて反応温度を比較的に低くしたいときには冷却しなければならず、また反応温度を比較的に高くしたいときには加熱を補促しなければならないが、いずれにしても反応開始までは常温以上で、かつ反応目標温度の数℃以下まで急速に温度を上昇させるように加熱するために、管16からジャケット15にスチームを供給し、管17からドレンで抜く。その後スチーム加熱を止め、加熱源として電気ヒータ18に切りかえるとともに、管16および管17のバルブを閉じ、管19よりジャケット15中に冷却水を少しずつ流し、管20よりこれを排出させる。電気ヒータ18はサーミスタ温度計21と連動する制御器21'によつて槽内温度の調節を自動的におこなう。

反応が急激になつて反応熱の影響による温度調節を困難にさせないため、および供給ガスにある程度の流速をもたせて UF_6 が万一局部的に冷却凝固しても配管中の閉塞物とならないようにするために、六弗化ウランガスを窒素ガスなどの乾燥ガスで希釈して供給することが好ましい。

反応時には上部気相空間25とエゼクタ8とは管27によつて連結されているので、エゼクタ8によつて導入管7から UF_6 ガスが吸引されるとともに、管27からも残留 UF_6 ガスを含む上部気相空間25のガスも吸引され、未反応六弗化ウランガスは何回も循環液と混合されて反応にあずかる。上部気相空間25には圧力計30および冷却管28を備え、冷却管28には適宜水、フロン等の冷媒を流して上部気相空間25中の極微量の未反応六弗化ウランガスの蒸気圧を冷却温度の蒸気

圧まで上げると、その大部分は固体化して冷却管上に付着し、これとアンモニア蒸気とが再び接触反応し得るかまたはこれが反応液面上に落ちて再び反応し得るようになるので、上部気相空間25のガス中における残留六弗化ウランガスの絶対量を減少させることができる。とくに前記のように供給ガスを乾燥ガスで希釈して使用する場合には、反応に関与しない乾燥ガスを管29から連続して排気しなければならず、排出ガスに同伴されて未反応の UF_6 が逸散されるので、これを補促して UF_6 ガスの排出を防ぐために、上記冷却方法は有効な手段である。たとえば反応温度56℃で冷却温度20℃のときには、ガス相に来る未反応 UF_6 ガスの約90%が捕促され、また反応温度20℃で冷却温度-10℃のときも同様に未反応 UF_6 ガスの約90%を捕促することができる。

以上により反応が終了したならば、生成した沈殿を管24から抜き出し、目的とする重ウラン酸アンモニウムの結晶を得る。

この発明装置においては、槽1内の液の攪拌運動がポンプ4の吸いこみ力によつて乱されないように、また管9からの UF_6 を含む循環液が管3に直接入らないように、管9の先端を反応槽1内の液が上向きに流動している層に挿入した構造の中間壁22を液面の上にもわたつて設けてある。この中間壁22の下部と反応槽1の底部23との間隔はポンプ4の吸引による流速を考慮して適当に設計されている。即ち上記間隔が狭ますぎるとここを通過するアンモニア水の流速が速くなりすぎて沈殿物もいつしよに吸い上げられることになる。また上記間隔が広すぎるとこんどは攪拌作用が充分に行われなくなる。

また中間壁22を環状円筒にして前記ジャケット15の作用を兼用させても良い。

図面に示す反応装置を用い、4重量%のアンモニア水溶液60ℓを反応槽にあらかじめ仕込み、これに六弗化ウランガス70容量%と窒素ガス30容量%との混合ガスを圧力760mmHg、温度57~65℃、流量約15ℓ/分で供給して反応をおこなつた。反応熱のみによつて反応液は約10℃上昇するが、反応槽の温度を前記のような加熱冷却同時方式によつて30±1℃に調節した。循環ポンプの液循環量は毎分50ℓであるが、六弗化ウランガス導入用エゼクタおよび拡散器内への配分量を毎分約15ℓおよび約35ℓとした。

アンモニア水溶液は六弗化ウランに対して過剰にあり、反応槽のガス相圧力は反応時においては760~800mmHgであつた。反応の結果、粒度0.8~1.5ミクロンの重ウラン酸アンモンの結晶沈殿が毎分330gの割合で生成し、排出ガス中の UF_6 損失は原料ガスの0.1%以下であつた。以上のように本発明は六弗化ウランとアンモニア水との反応収率の良い反応装置を提供することが出来る。なお本装置は反応液としてアンモニア水に限らず他の水溶液と六弗化ウランとの反応にも適用できるものである。

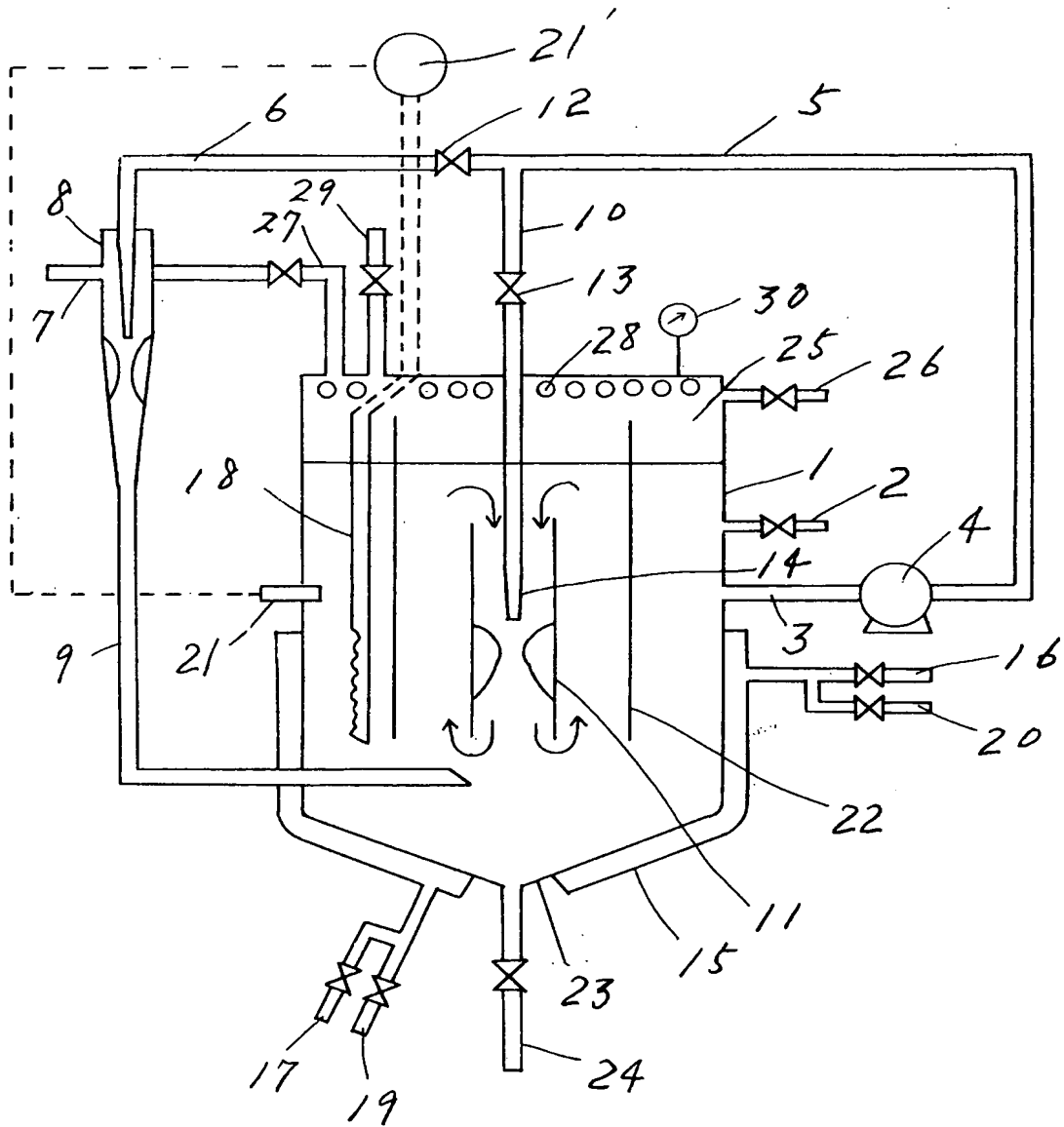
特許請求の範囲

1 反応液体およびガス相を収納する槽と、この槽内の液体の比較的上部の液をポンプにより槽外配管に導きこの液をエゼクタを介して六弗化ウラ

ンガスおよび前記ガス相のガスと混合し前記槽の液体の比較的下部に放散する循環装置と、上記反応液体を拡散する装置と、この装置ならびに前記槽内に設けられた中間壁と、前記ガス相内に設けた冷却装置とを備え、前記液体内で吸収されず残留した六弗化ウランガスを含む前記ガス相のガスを前記エゼクタにより前記反応液体内に戻すとともに前記冷却装置により前記残留六弗化ウランガスを凝縮するようにしたことを特徴とする六弗化ウランガスと液との反応装置。

引用文献

特 公 昭27-4312
特 公 昭28-2713



-PARTIAL TRANSLATION-

Examined Patent Application Publication No. S44-12009(1969)
Publication Date: May 31, 1969
Application No. S39-49251
Application Date: August 31, 1964

Inventors: Masami Yamaguchi, Masayoshi Ohno and Katsumi Hiro-oka
Applicants: TOKYO SHIBAURA ELECTRIC COMPANY, LTD.,
JAPAN NUCLEAR POWER, INC. and
MITSUI METAL MINING, LTD.

Title of the Invention: Apparatus for Reacting Uranium Hexafluoride
Gas with Liquid

Column 4, lines 20-34

An inner wall 22 is placed in the reaction tank 1 so that the inner wall extends up to a level above the surface of the liquid, in order to prevent the sucking force of a pump 4 from disturbing the stirring movement of the liquid in the tank 1. The end of a pipe 9 is inserted into the tank 1 so that the end is located at a phase where the liquid flows upward, which prevents a circulating liquid 6 that includes UF_6 discharged from the end of the tube 9 from directly flowing into a pipe 3. The distance between the lowest part of the inner wall 22 and the bottom 23 of the reaction tank 1 is determined suitably, in view of the flow rate of the liquid due to the sucking force of the pump 4. When the distance is too small, ammonia water passing through this part flows too fast, which draws sediment into the liquid flow. On the other hand, when the distance is too large, stirring is not sufficient.

The inner wall 22 may be in the shape of a double tube, and may be made to also have the function of the jacket 15 explained above.